

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平5-203347

(43)公開日 平成5年(1993)8月10日

(51)Int.Cl.⁵

F 2 5 J 3/04

識別記号

Z 8925-4D

1 0 4

庁内整理番号

8925-4D

F I

技術表示箇所

審査請求 未請求 請求項の数9(全 7 頁)

(21)出願番号 特願平4-296584
(22)出願日 平成4年(1992)10月9日
(31)優先権主張番号 7 7 4 2 1 3
(32)優先日 1991年10月10日
(33)優先権主張国 米国 (U S)

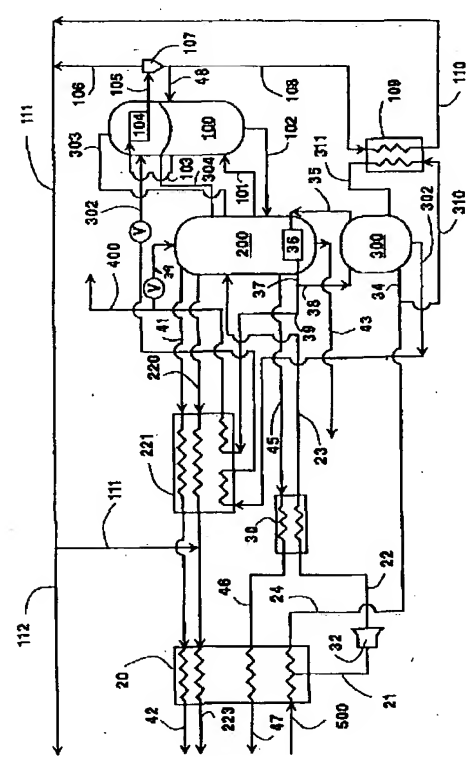
(71)出願人 592208736
ブラクセア・テクノロジー・インコーポレ
イテッド
アメリカ合衆国06810-5113コネティカッ
ト州ダンバリー、オールド・リッジバリー
ー・ロード39
(72)発明者 デイビッド・ロス・バースニック
アメリカ合衆国ニューヨーク州トナワン
ダ、ウェンドーバー・アベニュー-81
(72)発明者 ジェイムズ・ロバート・ドレイ
アメリカ合衆国ニューヨーク州ケンモー、
ハートフォード・アベニュー-267
(74)代理人 弁理士 倉内 基弘 (外1名)

(54)【発明の名称】 高純度酸素製造のための極低温精留システム

(57)【要約】

【目的】 改善された回収率を有する高純度酸素製造のための極低温精留方法及び装置の開発。

【構成】 酸素、窒素及びアルゴンを含む供給物（空気）500を主熱交換器20にて冷却し高压塔300及び低压塔200を備える主塔設備に導入し、極低温精留により前記供給物を窒素リッチ成分とロッチ富化成分とに分離し、主塔設備からのアルゴン及び酸素を含む流体101をアルゴン塔100に通入して、粗アルゴン103と酸素富化流体102とに分離し、酸素富化流体を主塔設備に通入しそして該主塔設備から高純度酸素43、47を回収しまた窒素製品42、400を回収するに際して、生成する粗アルゴン105を蒸気106と液体108に分離し、主熱交換器20及びアルゴン塔ボイラー109での供給物との熱交換を通してその冷凍能を主塔設備において冷凍力として利用する。低压塔の上方部分内での還流比を増加することにより酸素回収率の増加をもたらす。



【特許請求の範囲】

【請求項1】 改善された回収率で高純度酸素を製造するための極低温精留方法であって、(A) 酸素、窒素及びアルゴンを含む供給物を冷却しそして該供給物を少なくとも2塔を備える主塔設備に導入する段階と、(B) 前記主塔設備において極低温精留により前記供給物を窒素リッチ成分と酸素リッチ成分とに分離する段階と、

(C) 前記主塔設備からのアルゴン及び酸素を含む流体をアルゴン塔にアルゴン塔供給物として通入しそして該アルゴン塔供給物を該アルゴン塔内で極低温精留により粗アルゴンと酸素富化流体とに分離する段階と、(D) 前記酸素富化流体を前記主塔設備に通入しそして該主塔設備から高純度酸素を回収する段階と、(E) 前記粗アルゴンを供給物と間接熱交換状態に通して段階(A)の冷却を実施する段階とを包含する高純度酸素製造方法。

【請求項2】 粗アルゴンの少なくとも一部が供給物との熱交換後大気に放出される請求項1の方法。

【請求項3】 粗アルゴンの少なくとも一部が供給物との熱交換後回収される請求項1の方法。

【請求項4】 粗アルゴンを供給物との間接熱交換に通す前に液体粗アルゴンを供給物の下流側分流部分との間接熱交換により気化する段階を更に含む請求項1の方法。

【請求項5】 窒素富化成分を製品窒素として回収する段階を更に含む請求項1の方法。

【請求項6】 主塔設備から液体窒素を回収する段階を更に含む請求項1の方法。

【請求項7】 極低温精留装置であって、(A) (1) 少なくとも2つの塔を備える主塔設備、(2) アルゴン塔、(3) 該主塔設備から該アルゴン塔内に流体を提供する手段、及び(4) 該アルゴン塔から該主塔設備に流体を提供する手段と、(B) 主熱交換器、該主熱交換器から前記主塔設備に流体を提供する手段、及び前記アルゴン塔から該主熱交換器に流体を提供する手段と、

(C) 前記主塔設備から流体を回収する手段とを包含する極低温精留装置。

【請求項8】 アルゴン塔ボイラー、供給物をアルゴン塔ボイラーに通しそして該アルゴン塔ボイラーから主塔設備に通す手段、流体をアルゴン塔からアルゴン塔ボイラーにそして該アルゴン塔ボイラーから主熱交換器に通す手段を更に含む請求項7の装置。

【請求項9】 主塔設備が複塔を備える請求項7の装置。

【発明の詳細な説明】**【0001】**

【産業上の利用分野】 本発明は、酸素、窒素及びアルゴンを含む流体混合物、例えば空気の極低温精留技術に関するものであり、特にそうした極低温精留の使用による改善された回収率での高純度酸素の製造方法及び装置に関する。

【0002】

【従来の技術】 酸素、窒素及びアルゴンを含む混合物、例えば空気の成分分離のために多く使用されている工業的システムは、極低温精留である。こうした極低温分離により製造される有用な製品の一つは高純度酸素である。

【0003】 しかし、極低温精留による高純度酸素の製造においては一般に、酸素純度が増加するにつれ、酸素の収率即ち回収率が減少する。

【0004】 極低温精留による高純度酸素の回収は、極低温精留塔設備に段数を追加することにより改善することが出来る。

【0005】

【発明が解決しようとする課題】 しかし、この方法は、特にトレイ式塔区画が使用されるなら、極低温精留設備の設備投資及び運転コスト両方を増大する。

【0006】 本発明の課題は、改善された回収率を有する高純度酸素製造のための改善された極低温精留方法を開発することである。本発明のまた別の課題は、改善された回収率でもって高純度酸素を回収することを可能とする極低温精留装置を開発することである。

【0007】

【課題を解決するための手段】 本発明者は、アルゴン塔において生成された粗アルゴン中の冷凍能を逸失することなく、入来する供給物との熱交換を通して主塔設備において冷凍力として利用して極低温精留を推進することを想到した。本発明は、第1の様相において、改善された回収率で高純度酸素を製造する方法を提供するものであって、本方法は、(A) 酸素、窒素及びアルゴンを含む供給物を冷却しそして該供給物を少なくとも2塔を備える主塔設備に導入する段階と、(B) 前記主塔設備において極低温精留により前記供給物を窒素リッチ成分と酸素リッチ成分とに分離する段階と、(C) 前記主塔設備からのアルゴン及び酸素を含む流体をアルゴン塔にアルゴン塔供給物として通入しそして該アルゴン塔供給物を該アルゴン塔内で極低温精留により粗アルゴンと酸素富化流体とに分離する段階と、(D) 前記酸素富化流体を前記主塔設備に通入しそして該主塔設備から高純度酸素を回収する段階と、(E) 前記粗アルゴンを供給物と間接熱交換状態に通して段階(A)の冷却を実施する段階とを包含する。

【0008】 本発明の別の様相は極低温精留装置にあり、これは、(A) (1) 少なくとも2つの塔を備える主塔設備、(2) アルゴン塔、(3) 該主塔設備から該アルゴン塔内に流体を提供する手段、及び(4) 該アルゴン塔から該主塔設備に流体を提供する手段と、(B) 主熱交換器、該主熱交換器から前記主塔設備に流体を提供する手段、及び前記アルゴン塔から該主熱交換器に流体を提供する手段と、(C) 前記主塔設備から流体を回収する手段とを包含する。

【0009】(用語の定義)ここで使用するものとしての養護「高純度酸素」とは、少なくとも99.6%の酸素濃度を有する流体を意味する。ここで使用するものとしての用語「粗アルゴン」とは、少なくとも90%のアルゴン濃度を有する流体を意味する。

【0010】ここで使用するものとしての用語「塔」は、蒸留或いは分留を実施するためのカラム或いは帯域、即ち液体及び気体相を向流で接触して流体混合物の分離をもたらす接触カラム或いは帯域を意味し、これは例えば塔内に取付けられた一連の垂直方向に隔壁された10 トレー或いはプレートにおいて或いは塔に充填した秩序化乃至無秩序化配列された充填物要素において蒸気及び液体相を接触することにより実施される。蒸留塔のこれ以上の詳細については、マックグローヒル・ブック・カンパニー出版、アール・エッチ・ペリー等編「ケミカル・エンジニアズ・ハンドブック」13節、13-3頁、「連続蒸留プロセス」を参照されたい。

【0011】用語「複塔」とは、高圧塔と低圧塔とからなり、そして高圧塔の上端を低圧塔の下端と熱交換関係で接触せしめた塔設備を意味するのに使用される。複塔20 についての詳しい論議は、オックスフォード・ユニバーシティ・プレス出版(1949年)のルヘマン著「ザ・セパレーション・オブ・ガス」VII章の「工業的空気分離」に掲載されている。

【0012】「蒸気及び液体接触分離プロセス」は成分に対する蒸気圧差に依存する。高蒸気圧成分(即ち、より高揮発性、低沸騰点)成分は、蒸気相に濃縮する傾向があり、他方低蒸気圧成分(即ち、より低揮発性、高沸騰点)成分は、液体相に濃縮する傾向がある。「蒸留」とは、揮発性成分を蒸気相に濃縮し、それにより低揮発性成分を液体相に残すのに液体混合物の加熱作用を使用する分離プロセスである。また、「部分凝縮」は、揮発性成分を蒸気相に濃縮し、それにより低揮発性成分を液体相に残すのに蒸気混合物の冷却作用を使用する分離プロセスである。「精留或いは連続蒸留」とは、蒸気相と液体相の向流処理により得られるような順次しての部分30 的な蒸発及び凝縮を組み合わせる分離プロセスである。蒸気及び液体相の向流接触は断熱的でありそして相間の積分型或いは微分型接触を含むうる。混合物を分離するのに精留の原理を利用する分離プロセス設備は、精留塔、蒸留塔或いは分留塔と互換的に呼ばれることが多い。

【0013】用語「極低温精留」とは、250K以下の温度におけるような低温で少なくとも部分的に実施される精留プロセスである。

【0014】用語「間接熱交換」とは、2種の流体流れを相互の物理的接触或いは相互混合をもたらすことなく熱交換関係に持ちきたすことを意味する。

【0015】ここで使用するものとしての「アルゴン塔」とは、アルゴンを含む供給物を処理しそして供給物50

におけるアルゴン濃度を超えるアルゴン濃度を有する生成物を製造する塔及び頂部凝縮器を備える設備を意味する。

【0016】用語「平衡段」とは、存在する蒸気と液体流れとが平衡状態にあるような蒸気と液体との間での接触プロセスを意味する。

【0017】

【作用】酸素、窒素及びアルゴンを含む供給物が、主熱交換器を通して戻り流れとの間接熱交換により冷却される。高圧塔と低圧塔とが主塔設備を構成する。供給物の第1部分は、ターボ膨張機に通されて冷凍能を発生した後低圧塔に通入される。供給物の第2部分は、更に第1及び第2分流部分に分割される。第1分流部分は高圧塔に通入される。第2分流部分はアルゴン塔ボイラーを下流側で通過して粗アルゴンとの間接熱交換により冷却され、高圧塔に通入される。高圧塔内では、供給物からの供給流れは、極低温精留により窒素リッチ蒸気と酸素リッチ液体とに分離される。酸素リッチ液体は、アルゴン塔の頂部凝縮器に通入される。低圧塔からの酸素とアルゴンを含む流体流れは、アルゴン塔内に通入され、こ20 こで極低温精留により酸素富化流体と粗アルゴンとに分離される。酸素富化流体は、アルゴン塔から低圧塔内に通入される。粗アルゴン蒸気はアルゴン塔頂部凝縮器に通入され、部分凝縮し、同時に酸素リッチ液体を部分蒸発せしめる。生成する酸素リッチ蒸気と酸素リッチ液体は低圧塔に通入される。生成する2相粗アルゴン流れは相分離器に通入され、アルゴン蒸気とアルゴン液体に分離される。アルゴン蒸気流れの冷凍能が熱交換器を通過せしめることにより回収されうる。アルゴン液体流れは供給物第2分流部分との間接熱交換により揮化され、その後、生成する蒸気流れの冷凍能が熱交換器において回収される。こうして、粗アルゴンは入来する供給物を幾つかの形で冷却するのに使用される。

【0018】アルゴン塔において生成された粗アルゴン中の冷凍能は逸失されず、入来する供給物との熱交換を通して主塔設備において冷凍力として利用されて極低温精留を推進する。アルゴン塔ボイラーが使用されるなら、そこでの熱交換は粗アルゴンからの冷凍能を更に抽出しそしてそれを主塔設備に移す役目をなす。この回収された冷凍能は、回収されなければ低圧塔への供給空気のターボ膨張による等して主塔設備に供給されることになる冷凍力量をそれだけ減じる。低圧塔タービン空気量を減じること、低圧塔の上方部分内での還流比を増加することにより酸素回収率の増加をもたらす。

【0019】

【実施例】図1を参照すると、例えば空気のような酸素、窒素及びアルゴンを含む供給物500が、主熱交換器20を通して以下に詳しく説明する戻り流れとの間接熱交換により冷却される。供給物の第1部分21は、ターボ膨張機32に通されて冷凍能(冷凍力、冷気)を発50

生しそして生成する流れ22は熱交換器30に通されそして後流れ23として低圧塔200に通入される。供給物の第2部分24は、更に第1分流部分34と第2分流部分310とに分割される。第1分流部分34は、少なくとも2つの塔を備える主塔設備の高圧塔300に通入される。高圧塔300は、一般に65~90psia (4.55~6.3kg/cm²)の範囲内の圧力で運転されている。図1に例示される具体例では、主塔設備は、高圧塔300と低圧塔200を備える複塔設備から基本的に構成される。本発明の実施に使用しうる主塔設備の他の具体例としては、2つ以上の塔を直列に配列したものを含む。第2分流部分310は、熱交換器或いはアルゴン塔ボイラー109を下流側で通過することによる粗アルゴンとの間接熱交換により冷却される。その後、生成する流れ311は高圧塔に通入される。

【0020】高圧塔300内では、供給物500から派生する該塔内への幾つかの供給流れが、極低温精留により窒素リッチ蒸気と酸素リッチ液体とに分離される。酸素リッチ液体302は、高圧塔300から取り出され、熱交換器221を部分的に通過することによる間接熱交換により冷却されそしてアルゴン塔100の頂部凝縮器104に通入され、ここで自身は部分的に蒸発せしめられつつ同時に粗アルゴンを凝縮せしめる。生成する酸素リッチ蒸気と残りの酸素リッチ液体は流れ303及び304として低圧塔200にそれぞれ通入される。低圧塔200は、高圧塔300より低い圧力で運転されそして一般に16~25psia (1.1~1.8kg/cm²)の圧力範囲にある。

【0021】窒素リッチ蒸気は流れ35として主凝縮器36に通入され、ここで自身は凝縮しつつ低圧塔200の底液を再沸する役割をなす。生成する凝縮された窒素リッチ液体37は主凝縮器36から抜き出されそしてその一部38は還流として高圧塔300に戻して通される。窒素リッチ液体37の別の部分39は、熱交換器221を部分通過することにより冷却されそして低圧塔に還流として通入される。所望なら、流れ39の一部400は一般に99.95%を超える濃度を有する液体窒素製品として回収されうる。

【0022】低圧塔200内で、幾つかの供給物は、極低温精留により窒素リッチ成分と酸素リッチ成分とに分離される。窒素リッチ成分は低圧塔200から流れ41として抜き出され、熱交換器221及び20を通過することにより加温されそして一般に99.98%を超える窒素濃度を有する気体窒素製品42として回収されうる。廃棄流れ220は、流れ41を抜き出した水準より低い位置で低圧塔200から抜き出され、熱交換器221及び20を通過することにより加温されそして流れ223として系外に送られ、一般には大気に放出される。

【0023】酸素リッチ成分は低圧塔200から抜き出されそしてそして高純度酸素製品として回収される。図

1に例示した具体例では、高純度酸素液体流れ43は低圧塔200から抜き出されそして回収される。他方、高純度酸素蒸気流れ45は熱交換器30を通過することにより加温されそして生成する高純度酸素蒸気46は主熱交換器20を通過することにより加温されそして高純度気体酸素製品47として回収される。

【0024】酸素とアルゴンを含む流体流れ101は、低圧塔200からアルゴン塔100内に通入され、ここで極低温精留により酸素富化流体と粗アルゴンとに分離される。酸素富化流体は、アルゴン塔100から低圧塔200内に流れ102として通される。粗アルゴン蒸気は流れ103としてアルゴン塔頂部凝縮器104に通入され、ここですでに記載したように部分凝縮し、同時に酸素リッチ液体302を部分蒸発せしめる。生成する2相粗アルゴン流れ105は相分離器107に通入され、ここでアルゴン蒸気106とアルゴン液体108に分離される。液体アルゴンの一部48はアルゴン塔100に還流として戻される。アルゴン蒸気流れ106は、大気に排出しても良いし或いは塔100の頂部の圧力が充分なら蒸気流れ106における冷凍能が熱交換器20を通過せしめることにより回収されうる。圧力が充分でない場合に対しては、アルゴン液体流れ108は液体ヘッドによるなどして加圧されそしてすでに説明したように下流側供給流れ310との熱交換器109を通しての間接熱交換により揮化される。その後、生成する蒸気流れ110の冷凍能が熱交換器20において回収される。図1に例示した具体例はこれら2つの方法の両方を示し、ここでは蒸気流れ106と110が合流して粗アルゴン蒸気流れ111を形成する。しかし、粗アルゴン流れ111はまた流れ106或いは流れ110いずれかのみから全量を構成するようにもできることが理解されよう。

【0025】本発明の別の具体例において、粗アルゴン蒸気流れ103は頂部凝縮器104において全量凝縮され、以って相分離器1072及び流れ106の必要性を排除することができる。

【0026】粗アルゴン蒸気は入来する供給物を冷却するように主熱交換器20において入来する供給物との間接熱交換により加温される。好ましくは、図1に例示するように、粗アルゴン流れ111は廃棄流れ220と合流された後供給物を冷却する役目を果たす。別様には、流れ111は、別個に熱交換器20に通され、それに際して粗アルゴン流れ111の一部或いは全部が回収されそして更に処理されうる。所望なら、粗アルゴン流れの一部112が熱交換器を通すことなく回収されそして一つ以上の追加分離段階を経由して精製アルゴンを生成するようにすることもできる。

【0027】本発明の実施でもって、アルゴン塔において生成された粗アルゴン中の冷凍能は逸失されず、入来する供給物に移行され、結局主塔設備において利用されて極低温精留を推進する。熱交換器或いはアルゴン塔ボ

10

20

30

40

50

イラー109が使用されるなら、そこでの熱交換は粗アルゴンからの冷凍能を更に抽出しそしてそれを主塔設備に移す役目をなす。この回収された冷凍能は、回収されなければ低压塔への供給空気のターボ膨張による等して主塔設備に供給されることを必要とする所要冷凍力量をそれだけ減じる。低压塔（上方塔）タービン空気をそれだけ減じることは、低压塔（上方塔）の上方部分内での還流比を増加することにより酸素回収率の増加をもたらす。高压塔（下方塔）への流量が一層高くなるので還流比は増加し、高压塔（下方塔）への還流の流量増加をもたらす。低压塔（上方塔）への流量減少はまた低压塔（上方塔）の頂部での蒸気流れを減じる。

【0028】図2は、粗アルゴンを回収せずそして供給空気総計量の1%に相当する液体窒素流れを回収する本発明の計算例をグラフの形で示す。製品酸素回収率を縦軸としてそして製品酸素純度を横軸として測定した。

「酸素回収率」は、設備への供給物中に含まれる酸素の量に対する製品酸素中に含まれる酸素の量の比率として定義することができる。

【0029】曲線Aは、本発明の実施で得られた結果を表す。曲線Bは、比較目的で、従来型式の複塔設備を使用してアルゴン回収なしに得られた計算結果を表す。両方の場合において、データは、低压塔が秩序化された即ち規則的に配列された充填物を使用しそして廃棄流れ抜き出し点より下側に60段を有する複塔設備について計算された。図2からわかるように、本発明は、99.74%の純度において従来設備を使用して達成されるよりも0.8%相当の回収率の増加を可能ならしめる。更に、本発明の回収率の利益は酸素製品純度が99.97%に増加するとき1.7%相当まで増加する。

【0030】上述した本発明計算例及び比較計算例を液体窒素回収率を供給空気の4.5%であるように増加したことを除いて繰り返しそして結果を図3に例示した。図3からわかるように、99.74%の純度において従来設備で達成されたより酸素回収率において3.4%相当の増加を可能ならしめそして回収率増加の利益は99.90%の酸素純度において4.3%まで増加する。その後、もっと高い純度になると回収率の増加の利益はやや落ちるが、依然として相当の利益が得られている。

【0031】

【発明の効果】本発明の極低温精留システムの使用により、主塔設備での追加段数の使用を必要とすることなく高純度酸素の回収率を増加することができる。

【0032】本発明の好ましい具体例について説明したが、本発明の範囲内で他の多くの変更をなしうることを銘記されたい。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の好ましい具体例の概略流れ図である。

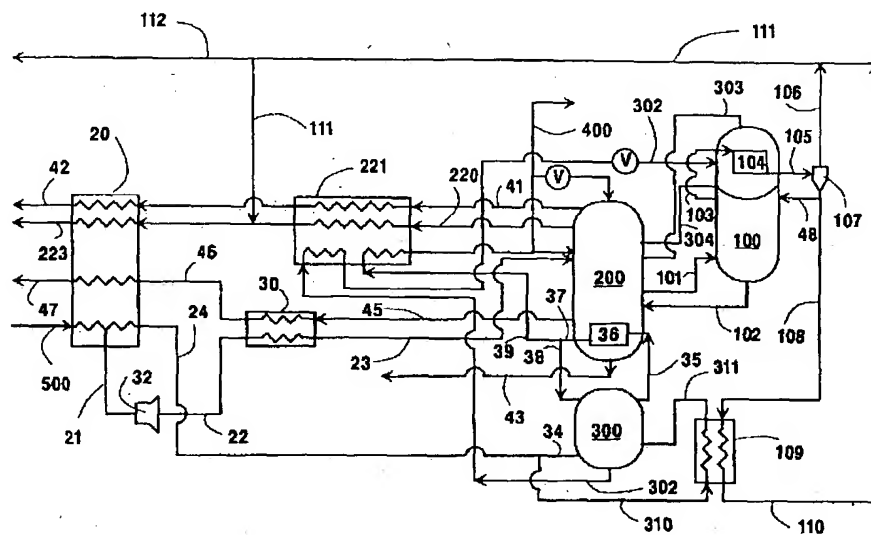
【図2】本発明の実施により得られた結果をアルゴン塔を使用することなく従来設備で得られた結果と比較するグラフである。

【図3】別の実施条件で本発明の実施により得られた結果をアルゴン塔を使用することなく従来設備で得られた結果と比較するグラフである。

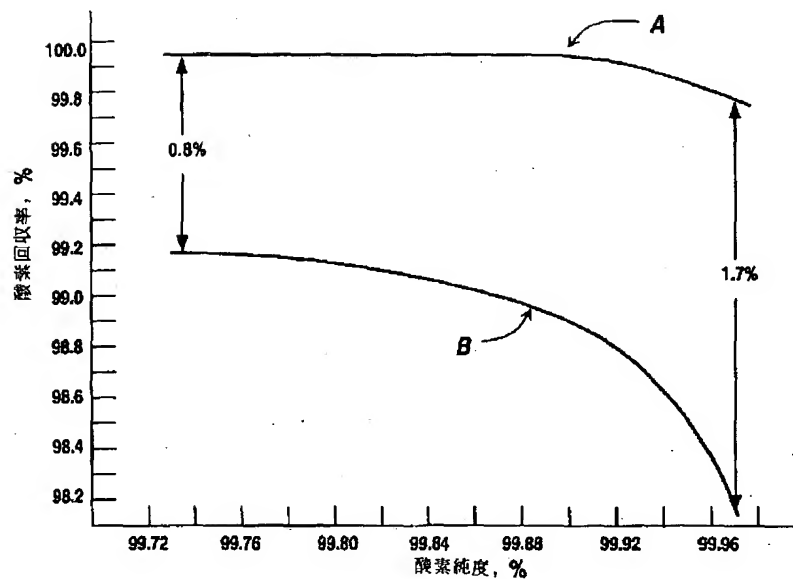
【符号の説明】

- 500 酸素、窒素及びアルゴンを含む供給物
- 20 主熱交換器
- 21 供給物の第1部分
- 24 供給物の第2部分
- 34、310 第2部分の第1及び第2分流部分
- 32 ターボ膨張機
- 30、221 熱交換器
- 200 低压塔
- 300 高压塔
- 36 主凝縮器
- 100 アルゴン塔
- 104 アルゴン塔頂部凝縮器
- 109 アルゴン塔ボイラー（熱交換器）
- 107 相分離器
- 302 酸素リッチ液体
- 303 酸素リッチ蒸気
- 304 酸素リッチ液体
- 35 窒素リッチ蒸気
- 37 窒素リッチ液体
- 38 還流
- 39 窒素リッチ液体
- 400 液体窒素製品
- 41 窒素リッチ蒸気
- 42 気体窒素製品
- 43 高純度液体酸素製品
- 45、46 高純度酸素蒸気
- 47 高純度気体酸素製品
- 220 廃棄流れ
- 101 酸素とアルゴンとを含む流体
- 102 酸素富化流体
- 103 粗アルゴン蒸気
- 105 2相粗アルゴン
- 106 アルゴン蒸気
- 108 アルゴン液体
- 48 液体アルゴン
- 110 アルゴン蒸気
- 111 粗アルゴン蒸気

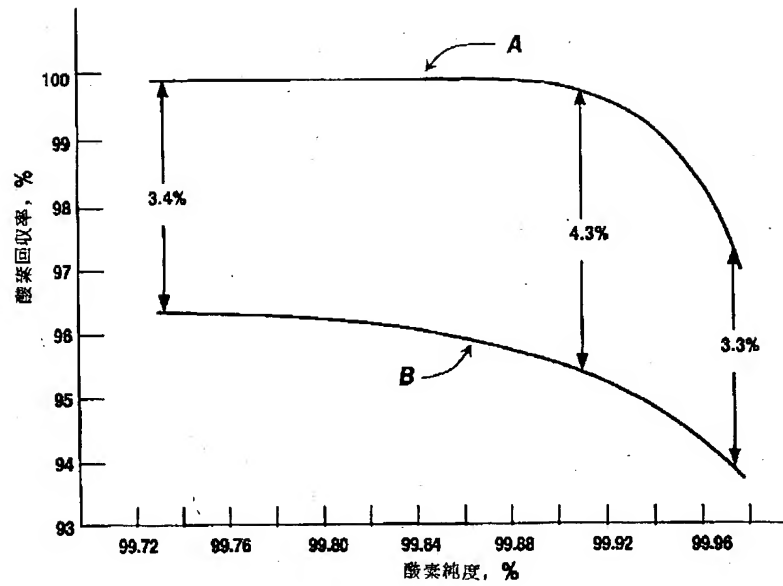
【図1】



【図2】



【図3】



【手続補正書】

【提出日】平成4年12月21日

【手続補正1】

【補正対象書類名】図面

【補正対象項目名】図1

【補正方法】変更

【補正内容】

【図1】

